



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets



(11) **EP 1 152 034 A1**

(12) **EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

(43) Veröffentlichungstag:
07.11.2001 Patentblatt 2001/45

(21) Anmeldenummer: 01110549.1

(22) Anmeldetag: 28.04.2001

(51) Int Cl.7: **C08L 51/06**, C09J 151/06,
C09D 151/06, C08L 23/00,
C08L 67/00, C08L 77/00,
C08G 59/06, C08L 51/04,
C08F 255/00

(84) Benannte Vertragsstaaten:
AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU
MC NL PT SE TR
Benannte Erstreckungsstaaten:
AL LT LV MK RO SI

(30) Priorität: 03.05.2000 DE 10021478

(71) Anmelder: **REHAU AG + Co**
95111 Rehau (DE)

(72) Erfinder:
• **Rhönisch, Thomas**
95111 Rehau (DE)
• **Steffl, Udo**
95111 Rehau (DE)
• **Mülhaupt, Rolf**
79117 Freiburg (DE)
• **Barghoorn, Peter**
67169 Hallstadt (DE)

(54) **Thermoplastische Elastomerezusammensetzung und deren Verwendung**

(57) Die Erfindung betrifft thermoplastisch verarbeitbare Elastomermischungen, in denen die Elastomerkomponente durch Reaktion von modifizierten Fetten und Ölen erzeugt und gleichzeitig vernetzt wird, be-

vorzugt durch dynamische Vulkanisation.

Die thermoplastisch verarbeitbare Elastomerezusammensetzung ist dadurch gekennzeichnet, dass sie mindestens aus vier Komponenten zusammengesetzt ist.

EP 1 152 034 A1

Beschreibung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft thermoplastisch verarbeitbare Elastomermischungen in denen die Elastomerkomponente durch Reaktion von modifizierten Fetten und Ölen erzeugt und gleichzeitig vernetzt wird, bevorzugt durch dynamische Vulkanisation.

[0002] Thermoplastische Elastomere sind dem Fachmann bereits seit mehreren Jahren bekannt.

In den letzten Jahren gewinnen Sie jedoch immer mehr an Bedeutung. Dieses Wachstum ist auf die attraktive Kombination von Thermoplast-Verarbeitung mit dem Erzielen von kautschukartigen Materialeigenschaften zurückzuführen.

[0003] Entsprechend ihrem chemischen Aufbau können Thermoplastische Elastomere unterteilt werden in Blockcopolymeren (Styroltypen (TPE-S), Polyetherester (TPE-E), Polyurethane (TPE-U) und Polyetheramide (TPE-A)) und Elastomerblends, bestehend aus thermoplastischen unvernetzten Polyolefinen (TPE-O) und (teil)vernetzten Polyolefinen (TPE-V). Werden beim Blenden Vernetzungsmittel zugesetzt, erhält man ein TPE-V. Die Vernetzung des Kautschuks führt dabei zu einer Reihe von Eigenschaftsverbesserungen, wie verbesserter Druckverformungsrest und Wärmeformbeständigkeit und erhöhten Reißfestigkeits- und Elastizitätswerten.

[0004] Wie beispielsweise von Marc T. Payne und Charles P. Rader "Thermoplastic Elastomers: a rising star" im Elastomer Technology Handbook Boca Raton F1, Editor: N. P. Cheremisinoff, CRC Press, 1993, S. 557 ff beschrieben, sind die elastischen Eigenschaften des resultierenden TPE um so ausgeprägter, je feiner die Verteilung und je höher der Vernetzungsgrad der Elastomerteilchen ist. Daneben werden die physikalisch-mechanischen Eigenschaften wie auch die chemische Beständigkeit und Verhalten gegenüber Kontaktmedien im wesentlichen durch die Einzeleigenschaften der Komponenten inklusive Verträglichkeit von Matrix und dispergiertem Kautschuk, der Phasenmorphologie und der Art des Vernetzungsmittels bestimmt. Beim Stand der Technik handelt es sich in der Regel um hochmolekulare Elastomere, die während der Verarbeitung vernetzt werden.

[0005] Die in-situ-Bildung von Elastomerkomponenten durch Reaktion aus Fett- und Ölderivaten wurde bisher nicht beschrieben. Ein Zusatz von niedermolekularen Komponenten kann neben der Weichmacherwirkung zu Ausschwitzungserscheinungen führen.

[0006] Die Gruppe der thermoplastischen Elastomere auf Basis von Polyolefinblends ist am weitesten verbreitet. Für die Kautschukphase werden in der Regel hochmolekulare EP(D)M-Co- und Terpolymere eingesetzt und dynamisch durch Schmelzecompoundierung in einer Polyethylen- und/oder Polypropylenmatrix mittels Phenolharz- [US 4104210], Schwefel-, Peroxid- [US 4267080; US 3806558; US 4732940; US 4785045], Platin-katalysierter Hydrosilylierungsreaktion [EP 0855 426 A1; US 5597867, US 5672660] oder Silankondensationsreaktion [DE-OS 1413063 A1; DE - 4402943] vernetzt.

Bei diesen Elastomerkomponenten wurde die erfindungsgemäße in-situ Herstellung der Elastomerkomponente sowie der Einsatz von chemisch modifizierten Ölen und Fetten zur Bildung der Elastomerkomponente nicht erwähnt.

[0007] In der US 5523350 wurden thermoplastische Elastomere aus einer Polyester-Matrix und einer diskontinuierlichen Acrylkautschukkomponente beschrieben, die durch epoxidierte Öle vernetzt wurde. Im Unterschied zur vorliegenden Erfindung wird ein hochmolekulares Elastomer durch epoxidierte Öle vernetzt.

[0008] Bekannt und als Verarbeitungswirkstoff in Polymeren, insbesondere Elastomeren in der DE 3307421 beschrieben sind epoxidierte und anschließend vernetzte Ester aus Alkoholen und ungesättigten Fettsäuren. Eine Verwendung als Kautschukkomponente in Elastomerblends über eine nachträgliche Einarbeitung wurde nicht beschrieben.

[0009] In den dem Fachmann bekannten Verfahren können fettchemische Epoxyde mit Maleinsäureanhydrid und/oder Phthalsäureanhydrid zu duromerartigen Polymeren umgesetzt werden. Bekannt ist weiterhin die Verwendung von modifizierten niedrigviskosen pflanzlichen oder tierischen Fetten und Ölen als Ausgangsverbindungen für die Herstellung von Polyesterharzen über RTM- oder VARTM-Verfahren und dergleichen. Die so erhaltenen Reaktionsprodukte sind jedoch nicht mehr thermoplastisch verarbeitbar.

[0010] Gegenstand dieser Erfindung ist die Herstellung von thermoplastisch verarbeitbaren Elastomerblends, die dadurch gekennzeichnet sind, dass während der Schmelzecompoundierung die Kautschukkomponente aus modifizierten pflanzlichen oder tierischen Fetten und Ölen erzeugt, vernetzt und homogen in einer kompatibilisierten Polyolefinmatrix dispergiert wird. Besonderes Kennzeichen der vorliegenden Erfindung ist die in-situ Herstellung von Polyesterkautschuken in einer Polypropylen/Poly(ethen-co-vinylacetat)-Matrix durch Reaktion der Di- oder Polyfettsäurekomponenten (C) mit den Oxirangruppen der Ölkomponente (D).

[0011] Erfindungsgemäß wird dies dadurch gelöst, dass die Elastomerblends mindestens aus den folgenden vier Komponenten zusammengesetzt sind:

[0012] 15 bis 70 Gewichtsprozent der Komponente (A), bestehend aus einem oder mehreren unpolaren oder polaren Olefinhomo- oder copolymeren und/oder thermoplastischen Polyestern und/oder Polyamiden, die in der Schmelze bei Temperaturen unterhalb von 400°C verarbeitbar sind; 0,1 bis 30 Gewichtsprozent der Komponente (B), bestehend aus einem oder mehreren unpolaren oder polaren Olefinhomo- oder copolymeren, die durch Pfropfen von Maleinsäureanhydrid, Ithaconsäureanhydrid, (Meth)Acrylsäure und deren Ester entstanden sind, oder aus anhydridfunktionalisierten

Copolymere wie Poly(styrol-co-maleinsäureanhydrid), Poly(ethen-co-maleinsäureanhydrid), Poly(ethen-co-1-olefin-co-maleinsäureanhydrid), wobei 1-Olefin ein Alken oder ein ungesättigter (Meth)Acrylsäureester mit mehr als 4C-Atomen ist, oder aus carbonsäurefunktionalisierten Copolymeren wie Poly(ethen-co-(meth)acrylsäure), Poly(ethen-co-1-olefin-co-(meth)acrylsäure), wobei 1-Olefin ein Alken oder ein ungesättigter (Meth)Acrylsäureester mit mehr als 4C-Atomen ist, einschließlich solchen Copolymeren, in denen die Säuregruppen teilweise mit Metallionen neutralisiert sind, oder aus einem oder mehreren unpolaren oder polaren Olefinhomo- oder copolymeren, die über Oxiranfunktionalitäten verfügen; 0,1 bis 50 Gewichtsprozent der Komponente (C), bestehend aus linearen, cyclischen oder verzweigten Polycarbonsäuren mit mindestens zwei Carbonsäuregruppen, oder Dicarbonsäureanhydriden, abgeleitet von Phthalsäure, Maleinsäure, Fumarsäure, Bernsteinsäure, Octenylbernsteinsäure, Dodecenylnbernsteinsäure, Dimerfettsäure, Trimerfettsäure, maleinierten ungesättigten Fettsäuren und Fettsäureestern, Adipinsäure, Sebazinsäure, Ithaconsäure, Methacrylsäure, Acrylsäure, einschließlich Derivaten von olefinisch ungesättigten Fetten und Ölen, und 0,1 bis 50 Gewichtsprozent der Komponente (D), bestehend aus nieder oder hochmolekularen Verbindungen, die über mindestens eine Oxirangruppe verfügen, wobei die Komponenten (C) und (D) miteinander in der Schmelze der Komponente (A) und (B) zur Reaktion gebracht werden und dynamisch vernetzte und/oder verzweigte Polyester in einer thermoplastischen Matrix der Komponenten (A) und (B) bilden.

[0013] Die Erfindung beinhaltet Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Gemische und ihre Verwendung für die Herstellung von Formmassen, Filmen, Folien, Schläuchen, Klebstoffen, Extrudaten, Sperrschichten und dergleichen.

[0014] Durch die erfindungsgemäße Kombination von dynamischer Herstellung und Vulkanisation der Elastomerkomponente und gleichzeitiger Dispergierung in einer modifizierten Polypropylenmatrix können sehr feine Morphologien erhalten werden, in denen die vernetzten Polyesterteilchen homogen verteilt sind. Zudem können gegenüber einem 2-Stufen-Prozeß mit vorgeschalteter Vernetzung der im Reaktor polymerisierten Kautschukkomponente und nachträglicher Redispergierung in der thermoplastischen Matrix (Statische Vulkanisation) die mechanischen Eigenschaften aufgrund der sehr kleinen Partikelgröße erheblich verbessert werden.

Bei dieser Erfindung wurde gefunden, dass aus niedermolekularen epoxidierten Ölen und Fetten ohne Zusatz höhermolekularer Elastomere thermoplastische Elastomere erzeugt werden können.

[0015] Bei Verwendung eines Zweischnellenextruders mit entsprechender Anordnung der Schneckenelemente können mit den erfindungsgemäßen Elastormischungen auch opak gefärbte Erzeugnisse erhalten werden, die in beliebigen Farbtönen einfärbbar sind.

[0016] Durch geeignete Wahl der Komponenten (A) und (B) kann die Verträglichkeit der Thermoplast-Elastomerbestandteile gezielt variiert werden. Bei Verwendung eines kompatibilisierten Polypropylen/Poly(ethen-co-vinylacetat)-Blends als Matrix zeigen die erfindungsgemäßen Elastomerblends sowohl die gute Wärmeformbeständigkeit von Polypropylen, als auch die elastischen Eigenschaften von Poly(ethen-co-vinylacetat). Zusätzlich wird durch die Poly(ethen-co-vinylacetat)-Blendherstellung die Verträglichkeit zur entstehenden Polyesterkautschukkomponente erhöht, welche die Dispergierfähigkeit und damit die physikalisch-mechanischen Eigenschaften verbessert.

[0017] Über die Art und Menge der reaktiven Gruppen der Komponenten (C) und (D) kann in den erfindungsgemäßen Zusammensetzungen die Elastomerkomponente während der Schmelzreaktion und das Eigenschaftsprofil gezielt maßgeschneidert werden. Kennzeichen der erfindungsgemäßen Mischungen ist auch die Möglichkeit, durch Blendherstellung mit Polypropylen die Wärmeformbeständigkeit zu erhöhen.

[0018] Besonders bevorzugte Komponenten (A) sind ein oder mehrere lineare oder verzweigte Polyethene, Ethen/1-Buten-, Ethen/1-Hexen-, Ethen/1-Octen-, Ethen/Styrol-, Ethen/Vinylacetat-, Ethen/Vinylalkohol-, Ethen/(Meth)Acrylat-, (Meth)Acrylsäure- Copolymere mit statistischen und Blocksequenzen, Ethen/1-Olefin- Ter und Quarterpolymere, und Blends von linearem oder verzweigtem Polyethen mit Elastomeren. Hier kann bevorzugt EP(D)M, isotaktisches, syndiotaktisches und Stereoblock- Polypropylen, elastomeres Polypropylen mit Stereoblock-Mikrostruktur, eingesetzt werden. In weiteren vorteilhaften Ausführungsformen ist die Komponente (A) Polypropylen, Propen/Ethen-, Propen/1-Olefin-Copolymere, Polypropylen/EP(D)M-Blends, Polypropylen/Poly(ethen-co-1-olefin) Blends, Polypropylen/Poly(ethen-co-vinylacetat) Blends, thermoplastische Elastomere wie Ethen/1-Octen-Copolymere mit 1-Octengehalt zwischen 8 und 40 Mol-%. Die zahlenmittleren Molmassen der Olefinhomo- und copolymere variieren zwischen 20000 und 800000 g/mol.

[0019] Erfindungsgemäße Komponenten (A) sind auch thermoplastische Polyester wie Poly(ethylen-terephthalat), Poly(butyl-terephthalat), Poly(ethylenisophthalat), Poly(naphthal-terephthalat), Poly(trimethylen-terephthalat), Poly(cethylennaphthalat), Poly(butylennaphthalat), thermoplastische Polyesterelastomere oder auch thermoplastische Homo-Polyamide, Copolyamide, aromatische Polyamide oder Polyamidelastomere. Bevorzugte gewichtsprozentuale Anteile der Komponente (A) in der Mischung von (A), (B), (C), (D) sind 15-70 Gew.-%.

[0020] Besonders bevorzugte Komponenten (B) sind Pfropfcopolymere von Olefinhomo- und Copolymere mit Malein- oder Ithaconsäureanhydrid, die durch Schmelzreaktion in der Gegenwart von Radikalen hergestellt wurden, Carbonsäurefunktionalisierte Copolymere wie Poly(ethen-co-(meth)acrylsäure, inklusiv Copolymere in denen die Säuregruppen teilweise oder ganz mit Metallionen, bevorzugt Zink, Natrium und Magnesium, neutralisiert wurden, und

Olefinhomo- und Copolymere, die mindestens über eine Oxiranfunktionen verfügen. Ganz besonders bevorzugte Komponente (B) sind maleinsäureanhydrid-funktionalisierte Polypropylene, maleinsäureanhydrid-funktionalisiertes Poly(ethen-co-vinylacetat), maleinsäureanhydrid-funktionalisierte Styrolblockcopolymere, Poly(ethen-co-(meth)acrylsäuren) mit teilweiser Neutralisation von Natrium und/oder Zink und epoxifyunktionalisierte Styrolblockcopolymere. Bevorzugte gewichtsprozentuale Anteile der Komponente (B) in der Mischung von (A), (B), (C), (D) sind 0-30 Gew.-%.

[0021] Besonders bevorzugte Komponenten (C) sind lineare, cyclische oder verzweigte Polycarbonsäuren mit mindestens zwei Carbonsäuregruppen einschließlich Derivaten von olefinisch ungesättigten Fetten und Ölen, die durch Katalyse mittels Tonerde aus ungesättigten Fettsäuren oligomerisiert wurden und Gemische isomerer Polycarbonsäuren darstellen, Polycarbonsäureanhydride und/oder maleinierte ungesättigte Fette und Öle pflanzlichen und tierischen Ursprungs. Bevorzugte gewichtsprozentuale Anteile der Komponente (C) in der Mischung von (A), (B), (C), (D) sind 0,1-50 Gew.-%.

[0022] Besonders bevorzugte Komponenten (D) sind partiell oder vollständig epoxydierte Derivate von olefinisch ungesättigten pflanzlichen oder tierischen Ölen und Fetten. Ganz besonders bevorzugte Komponenten (D) sind epoxydierte Sojabohnenöle, Palmöle, Leinöle, Vernoniaöle, Sonnenblumenöle, Rapsöle und dergleichen, wie sie zum Beispiel als Weichmacher für Poly(vinylchlorid) eingesetzt werden. Epoxydiertes Sojabohnenöl kann nach dem bekannten Verfahren durch Epoxydierung ungesättigter Fettsäuren mittels Ameisensäureperoxid hergestellt werden. Bevorzugte gewichtsprozentuale Anteile der Komponente (D) in der Mischung von (A), (B), (C), (D) sind 0,1-50 Gew.-%.

[0023] Die Reaktion der Komponenten (C) und (D) erfolgt in der Schmelze der Komponenten (A) und (B) bei Temperaturen unter 400°C, wobei bevorzugt das Molverhältnis zwischen Oxiran zu Carbonsäure bzw. Dicarbonsäureanhydrid zwischen 0,1 und 10, besonders bevorzugt zwischen 0,1 und 5 variieren kann.

[0024] Den erfindungsgemäßen Gemischen können eine Reihe weiterer Verbindungen zugesetzt werden, zum Beispiel Antioxidantien wie sterisch gehinderte Phenole, sterisch gehinderte Amine, Lactone, Lichtschutzmittel, Weichmacher, Füllstoffe wie zum Beispiel Magnesiumhydroxid, Calciumcarbonat, Talkum, Kieselsäuren, durch Kationen- oder Anionenaustausch modifizierte Silikate mit ionischen Schichtladungen, bevorzugt aufgeschlämmt in den Öl- und Fettkomponenten; Silikate; Haftvermittler wie zum Beispiel Silane, Titanate; Keimbildner, Treibmittel, Flammenschutzmittel, optische Aufheller, Pigmente, Metallsalze, Komplexbildner, Lang- und Kurzfasern, Gleitmittel, Ruße und dergleichen.

Im Verfahren zur Herstellung derartiger Verbindungen werden Reaktionsbeschleuniger zugesetzt, welche bevorzugt aus Imidazolen, Organophosphorverbindungen oder Metallkomplexen bestehen.

[0025] Die erfindungsgemäßen Gemische finden bevorzugt Verwendung für die Herstellung von Formmassen, Filmen, Folien, Schläuchen, Klebstoffen, Extrudaten, Sperrschichten und dergleichen.

Tabelle 1:

Beispiele 1 - 3		
Beispiel 1:	Beispiel 2:	Beispiel 3:
10 T PP	10 T PP	10 T PP
35 T EVA	35 T EVA	30 T EVA
5 T EVA-g-MAH	5 T EVA-g-MAH	5 T SBS-Epoxy
25 T ESO 1	25 T ESO 1	25 T ESO 1
25 T Dimerfettsäure	25 T Trimerfettsäure	25 T Dimerfettsäure/ Trimerfettsäure,
1 T Katalysator	1 T Katalysator	5 T Kreide
0.4 T Stabilisator	0.4 T Stabilisator	1 T Katalysator
		0.4 T Stabilisator

Tabelle 2:

Beispiele 4 und 5	
Beispiel 4:	Beispiel 5:
10 T PP	10 T PP
35 T EVA	35 T EVA
5 T EVA-g-MAH	5 T EVA-g-MAH
25 T Leinöl	25 T ESO 2
25 T Dimerfettsäure	25 T Dimerfettsäure

Tabelle 2: (fortgesetzt)

Beispiele 4 und 5	
Beispiel 4:	Beispiel 5:
1 T Katalysator 0.4 T Stabilisator	1 T Katalysator 0.4 T Stabilisator

Beispiel 1:

[0026] In einem Doppelschneckenextruder mit Dosiereinrichtung für flüssige Medien und Vakuumentgasung werden über die Dosierwaage Polypropylengranulat (Schmelzindex 6.5 g/10 min bei 230°C/2.16 kg), Poly(ethen-co-vinylacetat) (Schmelzindex 7.0 g/10 min bei 230°C/2.16 kg), maleiniertes Poly(ethen-co-vinylacetat) und Stabilisator B225 dosiert. Die Mischung wird aufgeschmolzen und in den Extruder eine Mischung aus epoxidiertem Sojabohnenöl genannt ESO (Viskosität bei 20°C 500-600 mPasec, Dimerfettsäure (Dynamische Viskosität bei 25°C 7500 mPasec und Katalysator über die Membranpumpe dosiert. Das resultierende opake Elastomerblend hat die in der Tabelle angegebenen Eigenschaften.

Beispiel 2:

[0027] In einem Doppelschneckenextruder mit Dosiereinrichtung für flüssige Medien und Vakuumentgasung werden über die Dosierwaage Polypropylengranulat (Schmelzindex 6.5 g/10 min bei 230°C/2.16 kg), Poly(ethen-co-vinylacetat) (Schmelzindex 7.0 g/10 min bei 230°C/2.16 kg) maleiniertes Poly(ethen-co-vinylacetat) und Stabilisator B225 dosiert.

[0028] Die Mischung wird aufgeschmolzen und in den Extruder eine Mischung aus epoxidiertem Sojabohnenöl (Viskosität bei 20°C 500 - 600 mPasec) Trimerfettsäure (Dynamische Viskosität bei 25°C 45000 mPasec) und Katalysator über die Membranpumpe dosiert.

Das resultierende Elastomerblend hat die in der Tabelle angegebenen Eigenschaften.

Beispiel 3:

[0029] In einem Doppelschneckenextruder mit Dosiereinrichtung für flüssige Medien und Vakuumentgasung werden über die Dosierwaage Polypropylengranulat (Schmelzindex 6.5 g/10 min bei 230°C/2.16 kg), Poly(ethen-co-vinylacetat) (Schmelzindex 7.0 g/10 min bei 230°C/2.16 kg) epoxidiertes Poly(Styrol-co-butadien-co-styrol) (Schmelzindex 9.0 g/10 min bei 190°C/2.16 kg) Stabilisator B225 und Kreide-Masterbatch dosiert. Die Mischung wird aufgeschmolzen und in den Extruder eine Mischung aus epoxidiertem Sojabohnenöl (Viskosität bei 20°C 500 - 600 mPasec) Dimerfettsäure/-Trimerfettsäuregemisch (Dynamische Viskosität bei 25°C 5800 mPasec) und Katalysator über die Membranpumpe dosiert.

Das resultierende Elastomerblend hat die in der Tabelle angegebenen Eigenschaften.

Beispiel 4:

[0030] In einem Doppelschneckenextruder mit Dosiereinrichtung für flüssige Medien und Vakuumentgasung werden über die Dosierwaage Polypropylengranulat (Schmelzindex 6.5 g/10 min bei 230°C/2.16 kg), Poly(ethen-co-vinylacetat) (Schmelzindex 7.0 g/10 min bei 230°C/2.16 kg), maleiniertes Poly(ethen-co-vinylacetat) und Stabilisator B225 dosiert. Die Mischung wird aufgeschmolzen und in den Extruder eine Mischung aus epoxidiertem Leinöl (Viskosität bei 20°C 500 - 600 mPasec, Dimerfettsäure (Dynamische Viskosität bei 25°C 7500 mPasec) und Katalysator über die Membranpumpe dosiert.

Das resultierende Elastomerblend hat die in der Tabelle angegebenen Eigenschaften.

Beispiel 5:

[0031] In einem Doppelschneckenextruder mit Dosiereinrichtung für flüssige Medien und Vakuumentgasung werden über die Dosierwaage Polypropylengranulat (Schmelzindex 6.5 g/10 min bei 230°C/2.16 kg), Poly(ethen-co-vinylacetat) (Schmelzindex 7.0 g/10 min bei 230°C/2.16 kg) maleiniertes Poly(ethen-co-vinylacetat) und Stabilisator B225 dosiert. Die Mischung wird aufgeschmolzen und in den Extruder eine Mischung aus epoxidiertem Sojabohnenöl (Viskosität bei 20°C 550 - 600 mPasec), Dimerfettsäure (Dynamische Viskosität bei 25°C 7500 mPasec) und Katalysator über die Membranpumpe dosiert.

[0032] Das resultierende Elastomerblend hat die in der Tabelle angegebenen Eigenschaften.

Tabelle 3:

Mechanische Eigenschaften der Elastomerblends					
Eigenschaft	Beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3	Beispiel 4	Beispiel 5
Reißfestigkeit ISO 527[N/mm ²]	8.5	10.9	7.6	6.9	7.5
Reißdehnung ISO 527 [%]	461.6	519.7	305.4	354.8	289.5
Weiterreißfestigkeit DIN 53507 [N/mm ²]	15.8	25.6	8.9	9.0	8.5
Druckverformungsrest 72 h bei RT DIN 53517 [%]	36.8	37.9	36.5	36.9	37.2
Shore A DIN 53505	76	83	76	75	69

Patentansprüche

1. Thermoplastisch verarbeitbare Elastomerzusammensetzung, **dadurch gekennzeichnet, dass** sie mindestens aus den folgenden vier Komponenten zusammengesetzt ist:

15 bis 70 Gewichtsprozent der Komponente (A), bestehend aus einem oder mehreren unpolaren oder polaren Olefinhomo- oder copolymeren, und/oder thermoplastischen Polyestern, und/oder thermoplastischen Polyamiden, die in der Schmelze bei Temperaturen unterhalb von 400°C verarbeitbar sind;

0,1 bis 30 Gewichtsprozent der Komponente (B), bestehend aus einem oder mehreren unpolaren oder polaren Olefinhomo- oder copolymeren, die durch Pfropfen von Maleinsäureanhydrid, Ithaconsäureanhydrid, (Meth)Acrylsäure und deren Ester entstanden ist, oder aus anhydridfunktionalisierten Copolymeren wie Poly(styrol-co-maleinsäureanhydrid), Poly(ethen-co-maleinsäureanhydrid), Poly(ethen-co-1-olefin-co-maleinsäureanhydrid), wobei 1-Olefin ein Alken oder ein ungesättigter (Meth)Acrylsäureester mit mehr als 4C-Atomen ist, oder aus carboxylfunktionalisierten Copolymeren wie Poly(ethen-co-(meth)acrylsäure), Poly(ethen-co-1-olefin-co-(meth)acrylsäure), wobei 1-Olefin ein Alken oder ein ungesättigter (Meth)Acrylsäureester mit mehr als 4-Atomen ist, einschließlich solchen Copolymeren, in denen die Säuregruppen teilweise mit Metallionen neutralisiert sind, oder aus einem oder mehreren unpolaren oder polaren Olefinhomo- oder copolymeren, die über Oxiranfunktionalitäten verfügen

0,1 bis 50 Gewichtsprozent der Komponente (C), bestehend aus linearen, cyclischen oder verzweigten Polycarbonsäuren mit mindestens zwei Carbonsäuregruppen; oder Dicarbonsäureanhydriden, abgeleitet von Phthalsäure, Maleinsäure, Fumarsäure, Bernsteinsäure, Octenylbernsteinsäure, Dodecylbernsteinsäure, Dimmerfettsäure, Trimerfettsäure, maleinierten ungesättigten Fettsäuren und Fettsäureestern, Adipinsäure, Sebazinsäure, Ithaconsäure, Methacrylsäure, Acrylsäure, einschließlich Derivaten von olefinisch ungesättigten Fetten und Ölen, und

0,1 bis 50 Gewichtsprozent der Komponente (D), bestehend aus nieder oder hochmolekularen Verbindungen, die über mindestens eine Oxirangruppe verfügen, wobei die Komponenten (C) und (D) miteinander in der Schmelze der Komponente (A) und (B) zur Reaktion gebracht werden und dynamisch vernetzte oder verzweigte Polyester in einer thermoplastischen Matrix der Komponenten (A) und (B) bilden.

2. Gemische nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** Komponente (A) thermoplastisch verarbeitbar und ein oder mehrere lineare oder verzweigte Polyethene, Ethen/1-Buten-, Ethen/1-Hexen-, Ethen/1-Octen-, Ethen/Styrol-, Ethen/Vinylacetat-, Ethen/Vinylalkohol-, Ethen/(Meth)Acrylat-, (Meth)Acrylsäure- Copolymere mit statistischen und Blocksequenzen, Ethen/1-Olefin- Ter und Quarterpolymere.
3. Gemische nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** Komponente (A) Polypropylen, Propen/Ethen-, Propen/1-Olefin-Copolymere, Polypropylen/EP(D)M-Blend, Polypropylen/Poly(ethen-co-1-olefin) Blend, Polypropylen/Poly(ethen-co-vinylacetat) Blend ist.
4. Gemische nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** Komponente (A) ein thermoplastisches Polyester

wie Poly(ethylterephthalat), Poly(butylterephthalat), Poly(ethylenisophthalat), Poly(naphthalenterephthalat), Poly(trimethylterephthalat), Poly(ethylennaphthalat), Poly(butylennaphthalat), thermoplastisches Polyesterelastomeres oder auch ein thermoplastisches Homo-Polyamid, Copolyamid, aromatisches Polyamid oder Polyamidelastomeres ist.

5

5. Gemische nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** Komponente (B) ein maleinsäureanhydridgepfropftes Homo- oder Copolymeres von 1-Olefinen, ein epoxyfunktionalisiertes Styrolcopolymeres oder ein Ionomeres ist.

10

6. Gemische nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** Komponente (C) eine lineare, cyclische oder verzweigte Polycarbonsäure mit mindestens zwei Carbonsäuregruppen, einschließlich Derivaten von olefinisch ungesättigten Fetten und Ölen, ein Polycarbonsäureanhydrid und/oder maleinierte ungesättigte Fette und Öle pflanzlichen und tierischen Ursprungs ist.

15

7. Gemische nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** Komponente (D) ein durch partielle oder vollständige Epoxydierung gebildetes Derivat von olefinisch ungesättigten pflanzlichen oder tierischen Ölen und Fetten ist.

20

8. Verfahren zur Herstellung von Gemischen nach Ansprüchen 1 bis 7, **dadurch gekennzeichnet, dass** zu einem Gemisch aus (A) und (B) die Komponenten (C) und (D) gegeben werden, wobei das Molverhältnis von Oxiran zu Carbonsäure bzw. Carbonsäureanhydrid zwischen 0,1 und 10 variieren kann.

9. Verfahren zur Herstellung von Gemischen nach Ansprüchen 1 bis 7, **dadurch gekennzeichnet, dass** Reaktionsbeschleuniger, bestehend aus Imidazolen, Organophosphorverbindungen oder Metallkomplexen zugesetzt werden.

25

10. Verwendung von Gemischen nach Ansprüchen 1 - für die Herstellung von Formmassen, Filmen, Folien, Fasern, Schläuchen, Klebstoffen, Lacken, Extrudaten, Sperrschichten und dergleichen.

30

35

40

45

50

55



Europäisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung
EP 01 11 0549

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int.Cl.7)
X	US 5 548 013 A (FUJII TAKESHI ET AL) 20. August 1996 (1996-08-20) * Spalte 2, Zeile 22 - Spalte 3, Zeile 65 ; Anspruch 1 ; Spalte 10, Zeile 29-55 ; Spalte 16, Zeile 33 - Spalte 18, Zeile 7 ; Spalte 18, Zeile 44 - Spalte 20, Zeile 7 ; Spalte 10, Zeile 64 - Spalte 11, Zeile 37* * Spalte 4, Zeile 30 - Spalte 6, Zeile 23 *	1-10	C08L51/06 C09J151/06 C09D151/06 C08L23/00 C08L67/00 C08L77/00 C08G59/06 C08L51/04 C08F255/00
X	EP 0 498 907 A (SUMITOMO CHEMICAL CO) 19. August 1992 (1992-08-19) * Seite 2, Zeile 54 - Seite 3, Zeile 15 ; Seite 7, Zeile 49 - Seite 8, Zeile 2 ; Seite 8, Zeile 16 - Seite 9, Zeile 10 ; Seite 3, Zeile 51-58 * * Seite 12, Zeile 35 - Seite 13, Zeile 37 *	1-10	
X	US 5 391 607 A (FUJII TAKESHI ET AL) 21. Februar 1995 (1995-02-21) * Spalte 2, Zeile 34 - Spalte 3, Zeile 6 ; Spalte 10, Zeile 66 - Spalte 12, Zeile 38 ; Spalte 17, Zeile 36 - Spalte 18, Zeile 14 ; Spalte 4, Zeile 6-14 * * Spalte 19, Zeile 35 - Spalte 21, Zeile 31 *	1-3,5-10	
Y		4	RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int.Cl.7)
X	EP 0 922 732 A (ADVANCED ELASTOMER SYSTEMS) 16. Juni 1999 (1999-06-16) * Anspruch 11 ; Seite 2, Zeile 55 - Seite 3, Zeile 3 ; Seite 3, Zeile 37-38 ; Seite 3, Zeile 44-53 * * Seite 4, Zeile 7-12 *	1-8,10	C08L C09J C09D C08G C08F
-/-			
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt			
Forscherin		Abschlußdatum der Recherche	
DEN HAAG		1. August 2001	
Forscher		Hammond, A	
KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE			
X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A : technologischer Hintergrund O : nichtschriftliche Offenbarung P : Zwischenliteratur		T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus anderen Gründen angeführtes Dokument A : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument	



Eur päisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

EP 01 11 0549

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int.Cl.7)
D, Y	US 5 523 350 A (VENKATASWAMY KRISHNA ET AL) 4. Juni 1996 (1996-06-04) * Spalte 1, Zeile 50 - Spalte 2, Zeile 2 ; Spalte 2, Zeile 17 - Spalte 3, Zeile 8 ; Spalte 3, Zeile 66 - Spalte 5, Zeile 13 * * Spalte 2, Zeile 5, 6; Ansprüche 1-15 *	4	
A	EP 0 742 268 A (ADVANCED ELASTOMER SYSTEMS) 13. November 1996 (1996-11-13) * Seite 4, Zeile 41-46 ; Seite 4, Zeile 50 - Seite 5, Zeile 3 ; Seite 2, Zeile 50 - Seite 4, Zeile 15 * * Ansprüche 1-17 *	1-10	
A	US 6 020 431 A (ABRAHAM TONSON ET AL) 1. Februar 2000 (2000-02-01) * Spalte 6, Zeile 55 - Spalte 9, Zeile 54; Beispiele 1-22 *	1-10	
A	EP 0 995 777 A (ADVANCED ELASTOMER SYSTEMS) 26. April 2000 (2000-04-26) * Seite 2, Zeile 34 - Seite 4, Zeile 12 *	1-10	
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt			RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int.Cl.7)
Forschungsort		Abschlußdatum der Recherche	
DEN HAAG		1. August 2001	
Forscher		Hammond, A	
KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE			
<p>X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A : technologischer Hintergrund O : nichtsonstige Offenbarung P : Zwischenliteratur</p> <p>T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E : älteres Patentedokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument I : aus anderen Gründen angeführtes Dokument & : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</p>			

EPJURN 1505034A1.PAGE 3

**ANHANG ZUM EUROPÄISCHEN RECHERCHENBERICHT
 ÜBER DIE EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG NR.**

EP 01 11 0549

In diesem Anhang sind die Mitglieder der Patentfamilien der im obengenannten europäischen Recherchenbericht angeführten Patentedokumente angegeben.

Die Angaben über die Familienmitglieder entsprechen dem Stand der Datei des Europäischen Patentamts am
 Diese Angaben dienen nur zur Unterrichtung und erfolgen ohne Gewähr.

01-08-2001

Im Recherchenbericht angeführtes Patentedokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 5548013 A	20-08-1996	US 5391607 A	21-02-1995
		CA 2035827 A	07-08-1992
		EP 0498907 A	19-08-1992
EP 0498907 A	19-08-1992	CA 2035827 A	07-08-1992
		US 5391607 A	21-02-1995
		US 5548013 A	20-08-1996
US 5391607 A	21-02-1995	CA 2035827 A	07-08-1992
		EP 0498907 A	19-08-1992
		US 5548013 A	20-08-1996
EP 0922732 A	16-06-1999	US 6069202 A	30-05-2000
		JP 11240989 A	07-09-1999
US 5523350 A	04-06-1996	KEINE	
EP 0742268 A	13-11-1996	US 5574105 A	12-11-1996
		AU 697634 B	15-10-1998
		AU 5221696 A	21-11-1996
		BR 9602206 A	07-04-1998
		CA 2174908 A	13-11-1996
		CN 1139686 A	08-01-1997
		DE 69611395 D	08-02-2001
		ES 2153912 T	16-03-2001
		JP 9025370 A	28-01-1997
US 6020431 A	01-02-2000	EP 0995777 A	26-04-2000
		US 5783631 A	21-07-1998
		US 5777033 A	07-07-1998
		US 5777029 A	07-07-1998
		US 6005052 A	21-12-1999
		EP 0962494 A	08-12-1999
EP 0995777 A	26-04-2000	US 5777029 A	07-07-1998
		US 6020431 A	01-02-2000

Für nähere Einzelheiten zu diesem Anhang : siehe Amtsblatt des Europäischen Patentamts, Nr.12/82